

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

## (10)特許公報

公告 昭和45年(1970)1月13日

発明の数 1

(全4頁)

I

2

## ④レジンアロイ

②特願 昭41-51620

②出願 昭41(1966)8月5日

優先権主張 ②1965年8月12日③アメリカ  
カ国④479330

②発明者 ロバート・ウイルトン・フィノルト

アメリカ合衆国コネチカット州リ  
バーサイド市バルマー・テラス610②出願人 ゼネラル・エレクトリック・コム  
パニーアメリカ合衆国ニューヨーク州  
12305・スケネクタデー・リ  
グアーロード1

代表者 アントン・ゼイ・ウイル

代理人 弁理士 安達世殷 外1名

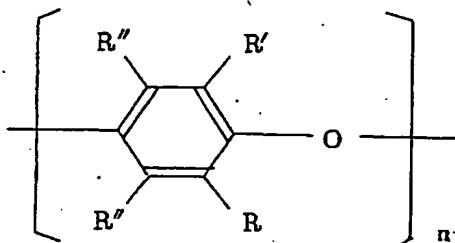
## 発明の詳細な説明

本発明は、ポリフェニレンオキサイドおよびポリアミドよりなるポリマーアロイに関する。ポリフェニレンオキサイド類は、-275下の脆性点から375下の加熱ひずみ温度に至る600下以上の温度範囲にわたつて独自の化学的、物理的、電気的特性の組み合わせを特徴とする新しいプラスチック体である。この特性の組み合わせのためポリフェニレンオキサイド類は多くの産業上の用途に有用となつてゐるが、この重合体の流れ特性は優れておらず押し出し操作中の種々の困難の原因となるので、その使用範囲はかなり限定され30る。

ポリフェニレンオキサイドの流れ特性はポリフェニレンオキサイドにポリアミドを添加することによつて著しく改良しうることを見出した。このことはポリアミドがポリフェニレンオキサイドに比較的不溶性であり、従つて可塑剤効果を与えることが期待できなかつたので特に驚くべきことである。

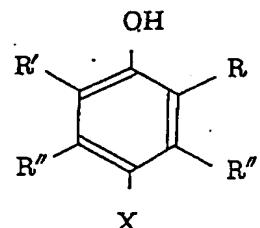
本発明の一目的は、優秀な流れ特性を有する新規な重合体配合物を提供するにある。

本発明の目的に従い、下記の一般式



(上式において、1単位の酸素原子は隣接する単位のベンゼン核に結合しており、nは少なくとも100の正の整数であり、Rは水素、炭化水素基、少なくとも2個の炭素原子を有するハロ炭化水素基、炭化水素オキシ基および少なくとも2個の炭素原子を有するハロ炭化水素オキシ基よりなる群より選択した一価置換基を示し、R'およびR''はRと同じで更にハロゲンを示す)を有するポリフェニレンオキサイドと、ポリアミドとのレジンアロイが提供される。

これらのポリフェニレンオキサイドは、第一、第二または第三級アミンおよび第三級アミンに溶解し第二銅状態で存在できる第一または第二銅塩の存在下に、酸素を下記の構造式を有するフェノールと反応させることによつて製造できる。



上記の式において、Xは水素、塩素、臭素、沃素よりなる群から選ばれた置換基であり、R、R'およびR''は前述したとおりである。

特に興味のあるのは、2,6-ジメチルフェノールおよび2,6-ジフェニルフェノールから誘

導した重合体である。この他に興味のあるのは、2-メチル-6-エチルフェノールおよびO-クレゾールから誘導した重合体である。

説明を簡潔にするため、本明細書で使用する「ポリフェニレンオキサイド」という用語は(フェノールから製造された)、置換されないポリフェニレンオキサイドのみでなく、種々の置換基(たとえば、上記においてR<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>およびR<sub>3</sub>が表わすもの)により置換されたポリフェニレンオキサイド類をも包含する。

本明細書で使用する「ポリアミド」という用語は、ジアミンと二塩基酸の縮合、ならびにアミノ酸の自己縮合により形成された重合体と、ラクタムの重合により形成された重合体とを包含する。本発明の目的に適するポリアミドは350下以上の温度で溶融するポリアミドであり、好ましくは375下ないし550下で溶融するポリアミドである。好ましいポリアミドとしては、ヘキサメチレン-アジパミド、ポリカプロラクタム、ポリヘキサメチレン-セバカミドおよびその共重合体がある。

一般に、ポリフェニレンオキサイドの流れ特性は、全組成物の0.1ないし25重量%のポリアミドを添加することにより改良される。しかし、ポリアミド濃度が20%以上となると、他の物理特性がかなり失われ始めることが判つた。ポリアミド濃度が1%より少なくなると、ポリフェニレンオキサイドの流れ特性はわずかしか改良されない。従つて好ましい実施態様においては、ポリアミドがポリマー-アロイの1ないし20%を構成し、30ポリフェニレンオキサイドが残余を構成する。

ポリアミドがポリフェニレンオキサイド中に均一に分散する限り、ポリフェニレンオキサイド中にポリアミドを分散するために使用する方法は重要な問題ではない。分散が不完全または不均一で35あると大きな集合体が形成され、この集合体はポリブレンドの物理特性を損う。ポリブレンドは、粒状または粉末状の2種の重合体を混合装置で混合し、その後成形または押出しを行うことにより形成される。別の便利な方法は、2種の重合体を40これら重合体が相互に溶解する溶媒に溶解し、重合体を均質な混合物として共沈させるものである。

一般に、押出しにより混合物を形成する場合は、まず粒状または粉末状の2種の重合体を回転操作により混合する。微細な粉末が好ましいが、これ45

は均質度を増大させるためである。重合体混合物は押出機のホッパーへ供給され、500ないし650下の温度でダイを通過する。分散を完全にするため、押出されたストランドをストランド切断機でペレット化し、同一の押出し条件で再び押出しを行なうのが望ましい。

ポリアミドをポリフェニレンオキサイドに添加すると、後者の流れ特性はきわめて増大する。ポリフェニレンオキサイド類の流れ特性を改良させれば、筒、棒、管その他の輪郭の押出しができる。

実施例に示した百分率はすべて重量による。

### 実施例 1

重合体配合物のポリフェニレンオキサイド成分は、30℃においてクロロフォルム中で測定した15 固有粘度が約0.60 dℓ/gであるポリ-(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン-オキサイド)であつた。ポリアミド成分は、イー・アイ・デニポン社製の「ザイテル101」と称するポリヘキサメチレン-アジパミドであつた。2種の重合体配合物と1種の対照試料を形成した。各配合物はそれぞれ0.1%と1%のポリアミドを含有した。微細粉末状の各成分を混合し、約293℃に維持した押出機にスクリュー速度23.5 rpmで通した。押出しダイは、幅0.15cmの2.5cmリボンダイであつた。ダイに発生する圧力を測定するため、ダイの直前に圧力計を配置した。下記の押出し圧が記録された。

### 第 I 表

ポリ-(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン-オキサイド)-ポリヘキサメチレン-アジパミド配合物を押出すに要する圧力

組成(重量% ポリアミド)	圧 力 (平均)
0	約194kg/cm <sup>2</sup> (2750psi)
0.1	約171kg/cm <sup>2</sup> (2425psi)
1.0	約169kg/cm <sup>2</sup> (2400psi)

ポリアミド濃度が増大するに従い押出し圧は低下する。

このような低濃度においては、ポリフェニレンオキサイドの引張特性についてのポリアミドの影響は最少となる。

## 実施例 2

実施例1の装置と手順により、別に三つの試験を行つた。重合体配合物の各成分は、30℃においてクロロフォルム中で測定した固有粘度、が約0.60 dl/gであるポリ-(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンオキサイド)と、イー・\*

\*アイ・デュポン社製の「ザイテル211」と称するポリカプロラクタムとにより構成した。重合体配合物はそれぞれ、0%、10%、20%のポリアミドを含有した。押出し温度は約290℃であり、スクリュー速度は23.5 rpmであつた。これにより得られた結果は次のとおりである。

## 第 II 表

ポリ-(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンオキサイド)とポリカプロラクタムの配合物

組成 (重量%ポリアミド)	押出し圧(平均)	降伏強度	破断強度
0	約194 kg/cm <sup>2</sup> (2750 psi)	約685 kg/cm <sup>2</sup> (9800 psi)	約521 kg/cm <sup>2</sup> (7400 psi)
10	約70 kg/cm <sup>2</sup> (1000 psi)	約584 kg/cm <sup>2</sup> (8300 psi)	約584 kg/cm <sup>2</sup> (8300 psi)
20	約42 kg/cm <sup>2</sup> (600 psi)	約556 kg/cm <sup>2</sup> (7900 psi)	約556 kg/cm <sup>2</sup> (7900 psi)

ポリアミドの濃度が増大すると、試料を押出すに要する圧力は急速に減少する。しかし、引張特性も低下し、ポリアミドの濃度が20%以上となると、その引張特性は余りに低下して多くの用途に適さなくなる。

## 実施例 3

押出機のスクリュー速度を50 rpmに増加し、実施例2を反復した。ポリアミドを含有しない試料のダイ直前の圧力は、前回同様約194 kg/cm<sup>2</sup> (2750 psi) であることが判つた。ポリアミドを10%含有する試料の圧力は約144 kg/cm<sup>2</sup> (2050 psi) であり、ポリアミドを20%含有する試料の圧力は約67 kg/cm<sup>2</sup> (950 psi) であつた。ポリアミドを含有するポリフェニレンオキサイドの流れ特性は実質的に改良されることが再び実証された。

## 実施例 4

粉末の代わりにペレットのポリアミドを使用し、実施例2を反復した。ポリアミドのペレットを10%含有する試料の押出し圧力は約70 kg/cm<sup>2</sup> (1000 psi) であり、ポリアミドを20%含有する試料の押出し圧力は約28 kg/cm<sup>2</sup> (400 psi) であつた。ポリアミドを含有しない対照試料の押出し圧は約194 kg/cm<sup>2</sup> (2750 psi)

であつた。

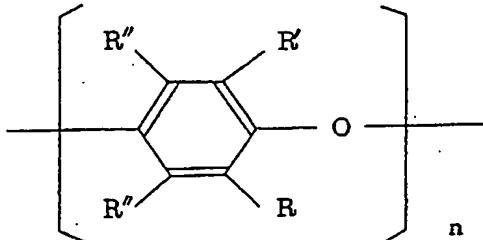
## 実施例 5

押出機スクリュー速度を50 rpmに増加し、実施例4を反復した。ポリアミドをそれぞれ0%、10%、20%含有する重合体配合物の押出し圧力は、おのおの約194 kg/cm<sup>2</sup> (2750 psi)、約134 kg/cm<sup>2</sup> (1900 psi)、約53 kg/cm<sup>2</sup> (750 psi) であつた。

重合体配合物には、ポリステレン、ポリオレフイン等の別の重合体をさらに含有させ得る。また、重合体配合物に可塑剤を添加し、流れ特性をさらに増大できる。上記組成物用の可塑剤としては、鉛油が特に適していることが判つた。

## 特許請求の範囲

## 1 一般式



(上式において、1単位の酸素原子は隣接する単位のベンゼン核に結合しており、nは少なくとも

7

100の正の整数であり、Rは水素、炭化水素基、少なくとも2個の炭素原子を有するハロ炭化水素基、炭化水素オキシ基および少なくとも2個の炭素原子を有するハロ炭化水素オキシ基よりなる群

8

より選択した一価置換基を示し、R'およびR''はRと同じで更にハロゲンを示す)を有するポリフエニレンオキサイドとポリアミドからなるレジンアロイ。